

中空系気液接触器の物質移動解析とその消化ガス精製プロセスへの適用

著者	澤原 大道
号	3
学位授与番号	10
URL	http://hdl.handle.net/10097/37914

氏 名 さわはら ひろみち
 授 与 学 位 澤 原 大 道
 学 位 記 番 号 博士 (環境科学)
 学位 授 与 年 月 日 環博第10号
 学位 授 与 年 月 日 平成18年3月24日
 学位 授 与 の 根 拠 法 規 学位規則第4条第1項
 研究科, 専攻の名称 東北大学大学院環境科学研究科 (博士課程) 環境科学専攻
 学 位 論 文 題 目 中空糸気液接触器の物質移動解析とその消化ガス精製プロセスへの適用
 指 導 教 員 東北大学教授 千田 侑
 論 文 審 査 委 員 主査 東北大学教授 千田 侑 東北大学教授 榎本 兵治
 東北大学教授 大村 達夫 東北大学助教授 井上 千弘
 (工学研究科)

論文内容要旨

下水処理場で発生する消化ガスの一般的な組成は、メタン濃度約 60%、二酸化炭素濃度約 40%であり、燃料とならない二酸化炭素が多量に含まれることから、有効利用が進まず、消化ガスから二酸化炭素を効率よく除去する (消化ガス精製) 技術が求められてきた。そこで、本研究では、従来の充填塔方式と比較して大きな気液接触面積を持つ、中空糸気液接触器を用い、二酸化炭素を効率よく水に吸収、除去し、消化ガス中のメタン濃度を向上させる (消化ガス精製) 技術を提案した (図 1-2-2)。また、気液接触器における物質移動を的確に表現する数学モデルを考案し、基礎方程式から気液間の物質移動速度の大きさの程度を表す液相基準の総括物質移動係数 (K_L) をパラメータとしたシミュレーターを作成し、試行錯誤法で適合させる手法により、 K_L の値を把握し、実験条件との比較から K_L に影響を与える因子を評価した。

まず、小規模実験とその性能評価を行った。中空糸の外側に水を張り、内側にガスを流す構造の小規模な中空糸モジュールを製作し、回収単独実験 (静止した液相から気相へ二酸化炭素が移動)、供給単独実験 (気相から静止もしくは流動した液相へ二酸化炭素が移動)、

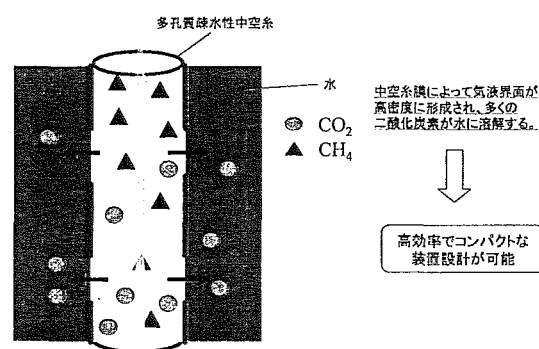
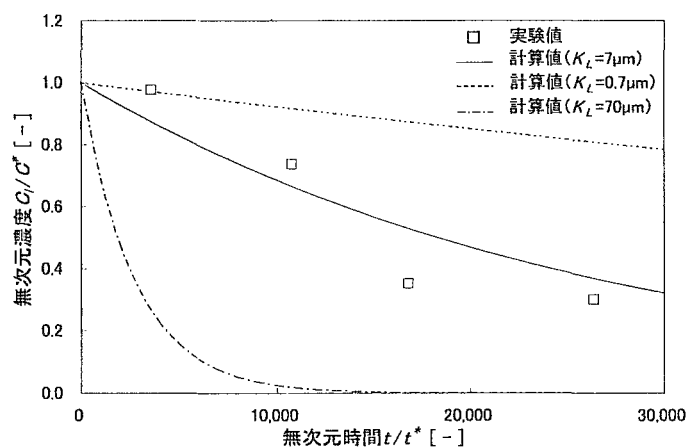


図 1-2-2 中空糸気液接触方式による消化ガス精製の基本原理



計算条件 : $K_L = 7 \mu\text{m/s}$

実験条件 : 水温 4.3°C、気温 5.0°C、Gas A 流量 1.7 dm³/min

図 2-4-1 回収単独実験の結果

供給回収実験（気相から静止した液相へ、さらに他の気相へ二酸化炭素が移動）を行った。実験では、液相中の二酸化炭素濃度をガスクロマトグラフィーで測定し、また、気相、液相の微小区間における二酸化炭素の収支を表現するモデルからシミュレーターを作成し、試行錯誤法で K_L を求めた（図 2-4-1）。今回作成した比較的単純な数学モデルは、実験結果とよく一致し、実験条件を的確に表現

表 2-4-2 回収単独実験の結果

No.	計算条件	実験条件		
	K_L	水温	Gas A 流量	気温
1	$7 \mu\text{m/s}$	4.3°C	$1.7 \text{ dm}^3/\text{min}$	5.0°C
2	$13 \mu\text{m/s}$	19.3°C	$2.2 \text{ dm}^3/\text{min}$	20.6°C
3	$21 \mu\text{m/s}$	27.2°C	$2.1 \text{ dm}^3/\text{min}$	30.3°C

表 2-4-4 供給単独実験（液相流動）の結果

No.	計算条件	実験条件		
	K_L	水温	Gas A 流量	気温
1	$45 \mu\text{m/s}$	6.0°C	$2.3 \text{ dm}^3/\text{min}$	5.9°C
2	$90 \mu\text{m/s}$	20.2°C	$1.3 \text{ dm}^3/\text{min}$	21.0°C
3	$100 \mu\text{m/s}$	27.2°C	$1.3 \text{ dm}^3/\text{min}$	31.4°C

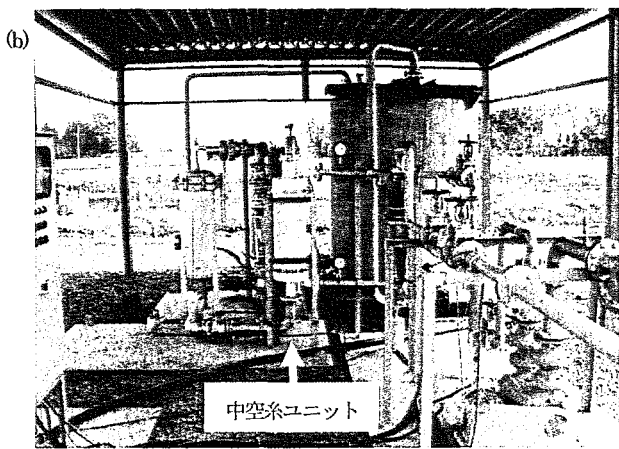


図 3-2-5 実験装置
(b) 中空糸ユニット

できたといえる。回収実験および供給単独実験（液相静止）では K_L が $7 \sim 21 [\mu\text{m/s}]$ となった（表 2-4-2）。供給回収実験でも同様の値が得られたことから、 K_L は中空糸間の距離に依存しないといえる。また、液相流動させた供給単独実験では、液相を静止させた場合と比較して、 K_L が 5~7 倍に増大した（表 2-4-4）ことから、 K_L は液相の流動状態に依存するといえる。さらに液相の流動状態に関わらず、 K_L の値は水温が高いほど大きいことから、 K_L は水温に依存しているといえる。

次に、気液接触器を用いた消化ガス精製プロセスの実用化を行った。中空糸を円柱状に束ね、ガスを中空糸の内側に流し、中空糸の外側で直交する方向に水を流す中空糸モジュールを製作し、実規模の実験装置を下水処理場に設置した（図 3-2-5）。また、脱硫消化ガスと水を用いて、消化ガスから二酸化炭素を除去し、メタン濃度を向上させる実験を行った。3 種類の中空糸モジュール、すなわち消化ガスと水を接触させる精製工程、二酸化炭素を含んだ水と空気を接触させ水中から二酸化炭素を除去（脱気）する空気流通工程、空気流通後の水から

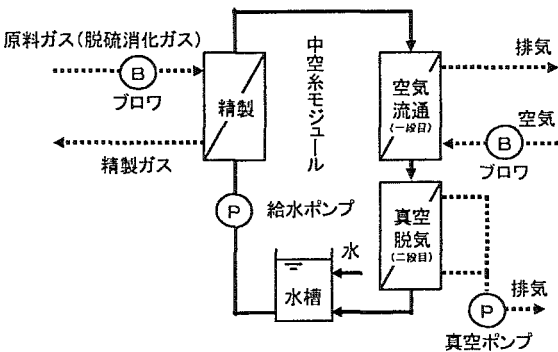


図 3-3-3 連続実験の概略フロー

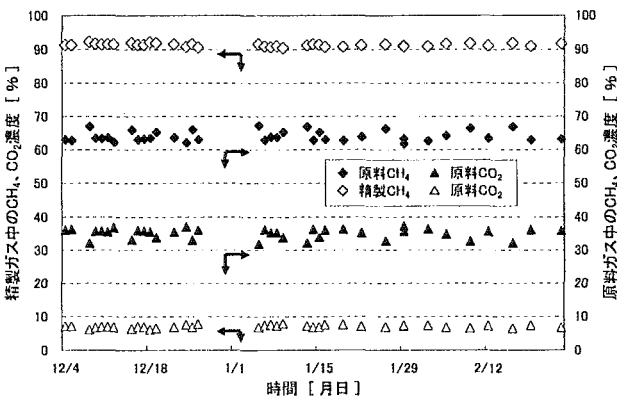


図 3-4-10 実験 2 の結果（原料ガス組成の影響）

溶存する二酸化炭素と空気を除去する真空脱気工程の順に水を循環させるプロセス（図3-3-3）により、精製ガス中のメタン濃度を長期間、安定的に90%へ増加させることができた（図3-4-10）。精製工程における水流量と原料ガス流量の比を接触比と定義すると、精製ガス中のメタン濃度を90%以上にする接触比は1.7程度であることが明らかになった。また、単位接触容積あたりの処理ガス量を容積負荷と定義すると、精製ガス中のメタン濃度を90%以上とする充填塔方式のメタン濃縮プロセスの場合、水温が13~27℃の時、大気圧近傍では5.3[1/h]（塔径2.2m、充填高さ7m、原料ガス量Max.140m³/h）とされている。本研究における代表的な容積負荷は、上記の充填塔方式と同様の水温条件において584[1/h]となる（気液接触部内径0.245m、中空系長さ0.618m、原料ガス量17m³/h）。よって、中空系気液接触方式は充填塔方式と比較して100倍以上の効率を有しているといえる。

さらに、数値計算による性能解析と性能予測を行った。実規模実験における K_L の値を把握するため、気相、液相の微小区間における二酸化炭素の収支を表現するモデル（図4-2-1）からシミュレーターを作成し、試行錯誤法で K_L の値を求めたところ、十分に水流量が多い条件において86~116[μm/s]となり、小規模の供給実験で液相を十分に攪拌した条件で得られた K_L の値（45~100[μm/s]：表2-4-4）と矛盾しないことから、十分に液相を流動させた場合に中空系気液接触器で得られる二酸化炭素の K_L は100[μm/s]程度と考えられる。得られた K_L と実験条件（原料ガス組成、精製ガス組成、原料ガス流量、水流量、接触比、水温）を比較、検討したところ、 K_L は水流量と水温に影響を受け、特に水流量に大きく依存することが明らかとなった（図4-3-5）。 K_L が中空系と水の相対速度差に比例すると仮定し、基準データ（水流量28.2m³/hのとき K_L が100[μm/s]）との比例計算で K_L を算出するモデルを作成し、任意の水流量における K_L の値が実験データとよく一致した（図4-4-2）ことから、この予測モデルは適当であると考えられる。

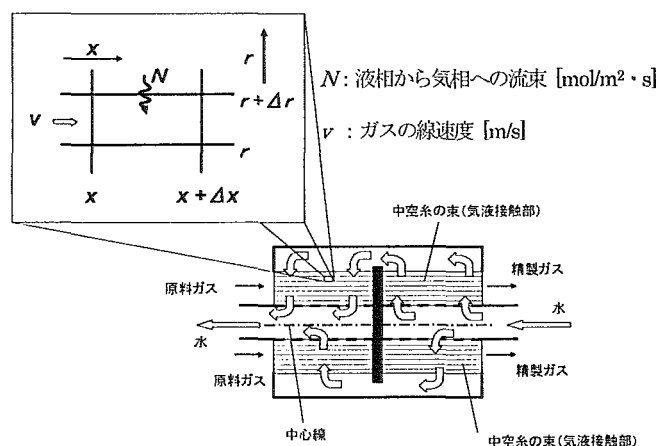


図4-2-1 数学モデルの概念

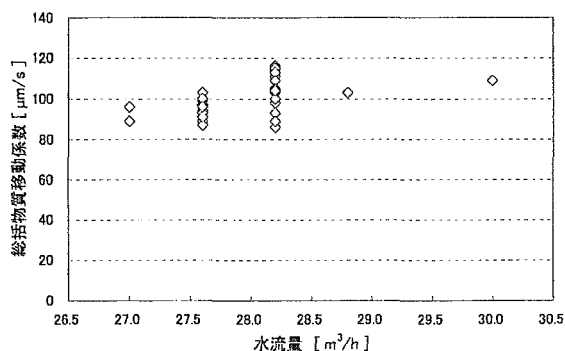


図4-3-5 水流量の影響（実験2）

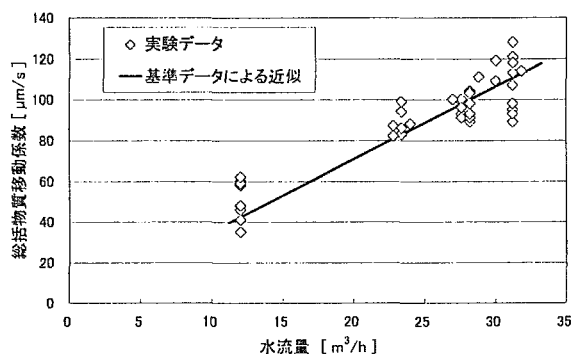


図4-4-2 水流量と K_L の関係（基準データによる近似）

4）と矛盾しないことから、十分に液相を流動させた場合に中空系気液接触器で得られる二酸化炭素の K_L は100[μm/s]程度と考えられる。得られた K_L と実験条件（原料ガス組成、精製ガス組成、原料ガス流量、水流量、接触比、水温）を比較、検討したところ、 K_L は水流量と水温に影響を受け、特に水流量に大きく依存することが明らかとなった（図4-3-5）。 K_L が中空系と水の相対速度差に比例すると仮定し、基準データ（水流量28.2m³/hのとき K_L が100[μm/s]）との比例計算で K_L を算出するモデルを作成し、任意の水流量における K_L の値が実験データとよく一致した（図4-4-2）ことから、この予測モデルは適当であると考えられる。

論文審査結果の要旨

下水処理場において下水汚泥の嫌気性消化から得られる消化ガス（メタン濃度約 60%）は、発生量のうちの約半分は焼却廃棄されており、エネルギー資源としてあまり有効に利用されていない。その理由として消化ガスには二酸化炭素濃度が約 40%含まれるため発熱量が低く、大容量のガスホルダー等を必要とすることなどがあげられ、二酸化炭素を効率よく分離するプロセスの開発が求められていた。本論文は、中空糸気液接触器を適用した消化ガス精製プロセスを実用化するための最適プロセスの構築とともに、中空糸気液接触器における物質移動速度に影響を与える因子を把握し、気液接触器構造の最適化を行ったもので、全文 5 章よりなる。

第 1 章は諸論である。

第 2 章では、疎水性多孔質中空糸を用いた小型の接触器を制作し、気液間での二酸化炭素の挙動を正確に把握した結果を示している。また、微小区間における物質移動を表現する数学モデルを考案し、総括物質移動係数をパラメータとしたシミュレーターを作成して、実験結果と数値計算結果を比較することにより、数学モデルの妥当性や物質移動速度の影響因子について明らかにしている。

第 3 章では、中空糸気液接触器を用いた二酸化炭素除去技術を考案し、消化ガスを精製する実規模実験を下水処理現場で実施した結果を述べている。原料ガスから大部分の二酸化炭素を除去し、メタン濃度約 90%の精製ガスを安定的に得ることができ、精製ガス中の二酸化炭素濃度を支配している運転条件は、接触比と水温であることを明らかにしている。新たに開発したプロセスは、充填塔方式と比較して約 100 倍の容積負荷を取ることができ、非常にコンパクトな設備構築が可能であることを示している。

第 4 章では、実規模実験の精製工程における二酸化炭素の移動速度を評価するために、小規模実験で妥当性を確認した数学モデルをおうようして新たなシミュレーターを作成し、中空糸気液接触器における二酸化炭素の移動速度を評価したところ、計算結果は実験結果とよく一致し、実験条件を的確に表現することができたことを示している。さらに、中空糸気液接触器のスケールアップに寄与する性能予測モデルを示している。

第 5 章は結論である。

以上要するに本論文は、消化ガスの有効利用を促進するため設備がコンパクトで流体制御が容易な中空糸気液接触器を適用した消化ガス精製プロセスを開発すると共に、中空糸気液接触器の性能予測を可能としたものであり、環境科学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士（環境科学）の学位論文として合格と認める。